

中華民國經濟部智慧財產局

INTELLECTUAL PROPERTY OFFICE  
MINISTRY OF ECONOMIC AFFAIRS  
REPUBLIC OF CHINA

茲證明所附文件，係本局存檔中原申請案的副本，正確無訛，  
其申請資料如下：

This is to certify that annexed is a true copy from the records of this  
office of the application as originally filed which is identified hereunder:

申請日：西元 2003 年 09 月 29 日  
Application Date

申請案號：092126800  
Application No.

申請人：大同股份有限公司  
Applicant(s)

局長

Director General

蔡練生

發文日期：西元 2004 年 2 月 11 日  
Issue Date

發文字號：09320125500  
Serial No.

# 發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號： 92126800

※申請日期： 92. 8. 29 ※IPC 分類：

壹、發明名稱：(中文/英文)

具有旋光性之化合物

貳、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

大同股份有限公司

代表人：(中文/英文) 林挺生

住居所或營業所地址：(中文/英文)

台北市中山區中山北路3段22號

國籍：(中文/英文) 中華民國

參、發明人：(共 2 人)

姓名：(中文/英文)

1. 吳勛隆

2. 林卓瑩

住居所地址：(中文/英文)

1.2. 台北市中山區中山北路3段22號

國籍：(中文/英文) 1.2. 中華民國

#### 肆、聲明事項：

☒ 本案係符合專利法第二十條第一項☒第一款但書或☐第二款但書規定之期間，其日期為：2003 年 4 月 日。

◎本案申請前已向下列國家（地區）申請專利 ☐ 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 無

2.

3.

4.

5.

☐ 主張國內優先權（專利法第二十五條之一）：

【格式請依：申請日；申請案號數 順序註記】

1.

2.

☐ 主張專利法第二十六條微生物：

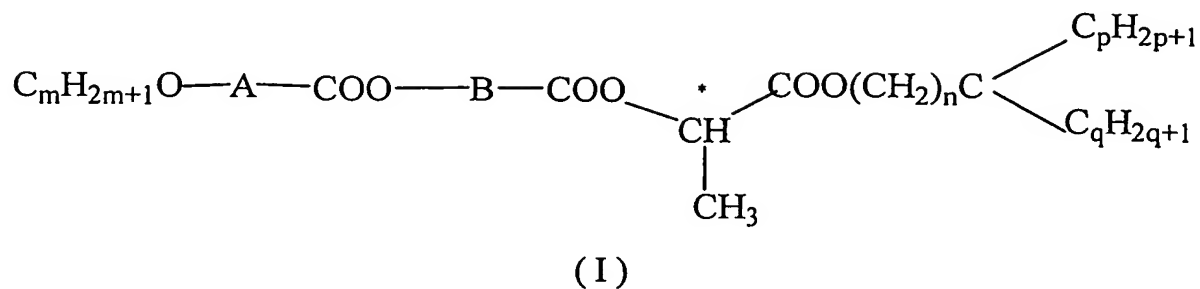
☐ 國內微生物 【格式請依：寄存機構；日期；號碼 順序註記】

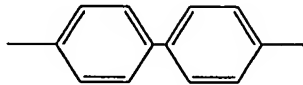
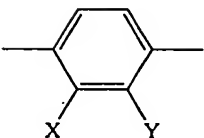
☐ 國外微生物 【格式請依：寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記】

☐ 熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

## 伍、中文發明摘要：

本發明係有關於一種具有旋光性之化合物，其係具有如下式(I)之通式：



其中，A,B 分別獨立地為，，或 ，X,Y 分別獨立地為 F, H,或 Cl；m 為 8~12 之整數；n 為 0 或 1；p 為 2 或 3；以及 q 為 2 或 3。

## 陸、英文發明摘要：

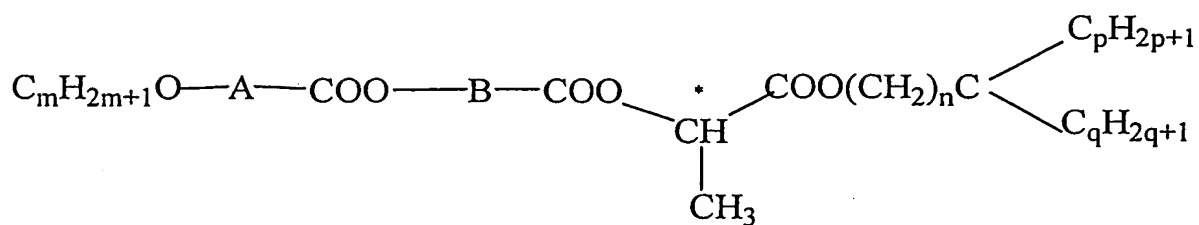
## 柒、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：圖(7)。

(二)本代表圖之元件代表符號簡單說明：

該圖無元件代表符號

捌、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：



## 玖、發明說明：

### 【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種具有光學活性之液晶材料，尤指一種適用於具有強鐵電性之液晶材料。

5

### 【先前技術】

鐵電性液晶(ferroelectric crystal)是一種具有自發性分極特性，且在外加一外部電場時，其自發性分極之極性會隨之反轉的材料。液晶分子若要具有強鐵電性其必要條件包括：(1)有傾斜角之層列(smectic)液晶相；(2)液晶分子的末端基包括有不對稱之碳中心光學活性分子(但此分子不可生成外消旋體)；且(3)液晶分子在垂直於分子長軸方向上具有偶極矩。不對稱的碳中心將會加快應答時間，而不對稱碳中心的極性、旋轉黏度和外加電場的強度，是影響強鐵電型  
10 液晶之應答速度的重要因素。  
15

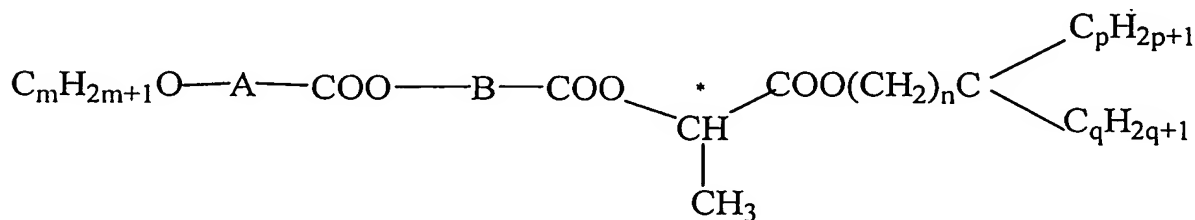
強鐵電性液晶分子排列形狀係呈螺旋層狀排列，當兩層分子呈現相同之傾斜排列方式時，其之間的距離稱為一個 pitch。但是當強鐵電性液晶夾在兩片間隙小於一個 pitch 的導電性玻璃之間時，因為液晶分子的排列受到限制而無法形  
20 成螺旋的層狀排列，且當外加電場被移除時，分子不會回復到外加電場前的排列狀態，亦即強鐵電性液晶會保持外加電場時的分子排列方式，此即稱為表面雙安定強鐵電性液晶(surface stabilized ferroelectric liquid crystal)。

而具有燕尾結構 (swallow-tailed) 團基之非旋光性 (achiral) 材料已經被證實，在反鐵電性結構 (antiferroelectric-like structure) 時具有  $S_m C_{alt}$  相。旋光性燕尾材料 (S)-EP10PBNP 是從光學活性之 (2S)-2-(6-hydroxy-2-naphyl)propionic acid 衍生而得，其具有 2-ethylpropanol 作為燕尾基，被證實具有反鐵電性。

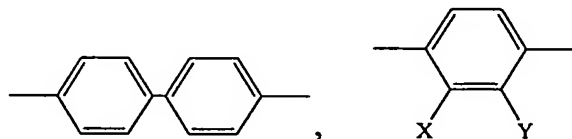
### 【發明內容】

本發明之主要目的係在提供一種具有旋光性之液晶材料，俾能使液晶材料具有寬廣的液晶操作溫度範圍。

為達成上述目的，本發明提供一系列從光學活性乳酸 ((L)-lactic acid) 衍生而得之具光學活性之燕尾材料，其配合有適當之烷基醇 (alkanol) 作為燕尾基。本系列之光學活性燕尾材料其具有如式 (I) 之通式：



其中，A, B 分別獨立地為，



X, Y 分別獨立地為 F, H, 或 Cl；m 為 8~12 之整數；n 為 0 或 1；p 為 2 或 3；以及 q 為 2 或 3。

由於本發明所提供之材料係為乳酸之衍生物，而乳酸是一種可購得之旋光性材料，並且廣泛地被用來作為乳酸液晶材料中之具旋光性團基。

## 5 【實施方式】

根據實施例一或二的方法所製造出的化合物I、II及III系列中，SmA\*相係以focal-conic texture的形成為特徵，而SmC\*相則是以broken focal conic texture之形成為特徵。所有本發明之化合物皆展現出enantiotropic SmA\* 及 SmC\* 相，而化合物II(10,0,2)則具有一附加的未確認之SmX\*相。標的化合物的中間相及轉變溫度係以DSC測量，並列於表1,2,3中。

表 1.化合物 I(m,2,2; m=8~12)之相變化溫度及相關熱焓資料

相變化溫度(°C) <sup>a</sup>								
m	Iso		SmA*		SmC*		Cr <sup>b</sup>	m.p. <sup>c</sup>
8	°	126.4 [4.26] <sup>d</sup>	°	102.2 [0.25]	°	16.2 [6.42]	°	76.6 [27.98]
9	°	120.4 [2.42]	°	103.4 [0.35]	°	13.5 [6.59]	°	73.5 [22.37]
10	°	120.4 [3.45]	°	105.9 [0.63]	°	21.4 [13.58]	°	82.2 [34.76]
11	°	113.5 [4.74]	°	102.2 [2.23]	°	27.4 [29.27]	°	79.4 [46.02]
12	°	111.6 [2.55]	°	100.9 [0.92]	°	31.3 [26.96]	°	60.43 [43.72]

<sup>a</sup>Recorded by DSC thermograms at cooling rates of 5°C min<sup>-1</sup>

<sup>b</sup>Cr refers to crystal.

<sup>c</sup>m.p. refers to melting point taken from DSC thermograms recorded at heating rates of 5°C min<sup>-1</sup>.

<sup>d</sup>Figures in square parenthesis denote enthalpies quoted in Jg<sup>-1</sup>.



表 2.化合物 II(10, n, q; n=0, 2~4, q=2~4)之相變化溫度及相關熱焓資料

化合物	相變化溫度(°C) <sup>a</sup>					
	Iso	SmA*	SmC*	SmX*	Cr. <sup>b</sup>	mp. <sup>c</sup>
II(10, 0, 2)	◦	146.5 [5.59] <sup>d</sup>	◦ 117.8 [0.54]	◦ 31.6 [4.09]	◦ 16.83 [19.4]	◦ 60.3 [45.81]
II(10, 2, 2)	◦	120.4 [3.45]	◦ 105.9 [0.63]	◦ 21.4 [13.58]		◦ 82.2 [34.76]
II(10, 3, 3)	◦	101.3 [9.49]	◦ 85.5 [2.67]	◦ 21.5 [18.04]		◦ 38.7 [32.04]
II(10, 4, 4)	◦	89.6 [1.05]	◦ 69.7 [0.51]	◦ 20.5 [17.10]		◦ 48.7 [36.95]

5 <sup>a</sup>Recorded by DSC thermograms at cooling rates of 5°C min<sup>-1</sup>

<sup>b</sup>Cr refers to crystal.

<sup>c</sup>m.p. refers to melting point taken from DSC thermograms recorded at heating rates of 5°C min<sup>-1</sup>.

<sup>d</sup>Figures in square parenthesis denote enthalpies quoted in Jg<sup>-1</sup>.

10

表 3.化合物 III(X,Y)之相變化溫度及相關熱焓資料

相變化溫度(°C) <sup>a</sup>							
化合物	Iso	SmA*		SmC*		Cr <sup>b</sup>	m.p. <sup>c</sup>
I (10, 2, 2)	◦	120.4	◦	105.9	◦	21.4	◦ 82.2
		[3.45] <sup>d</sup>		[0.63]		[13.58]	[34.76]
III (F, H)	◦	95.0	◦	74.5	◦	20.4	◦ 38.8
		[6.45]		[0.54]		[29.37]	[35.74]
III (Cl, H)	◦	73.2	◦	45.5	◦	-1.9	◦ 34.7
		[4.26]		[0.01]		[12.13]	[20.22]
III (H, F)	◦	113.1	◦	95.6	◦	14.3	◦ 27.4
		[6.78]		[0.36]		[19.01]	[24.94]
III (H, Cl)	◦	86.1	◦	69.6	◦	10.8	◦ 34.7
		[3.99]		[0.53]		[4.44]	[20.22]

<sup>a</sup>Recorded by DSC thermograms at cooling rates of 5°C min<sup>-1</sup>

<sup>b</sup>Cr refers to crystal.

<sup>c</sup>m.p. refers to melting point taken from DSC thermograms recorded at heating rates of 5°C min<sup>-1</sup>.

<sup>d</sup>Figures in square parenthesis denote enthalpies quoted in Jg<sup>-1</sup>.

5

圖 1 係化合物 I(m,2,2) 之相轉變溫度對碳鍊長度 m 之變化圖。從圖中可知，本系列化合物展現出一寬廣溫度範圍之鐵電性 SmC\* 相，且澄清點隨著碳鍊增長而降低，但 SmC\*-Cr 轉變溫度卻隨之增加。此即意味著，SmA\* 及 SmC\* 的熱穩定性在 m 增加的時候被抑制。

10

圖 2 顯示出以直鍊碳鍊或燕尾碳鍊作為變因而連接到旋光尾端，在冷卻時的相變化圖，包括化合物 I(10,2,2) 以及化合物 II(10,n,q)。從圖中可以見到，連接到旋光尾端的若為直鍊碳鍊時，其 SmA\* 以及 SmC\* 相之熱穩定度較為良好。該種特性證明旋光尾端的團基碳鍊長度對於抑制層列相 (smetic) 的生成有所影響。本實驗同時證明，當燕尾碳鍊之長度增加時，clearing point 以及 SmA\*-SmC\* 相轉變溫度會隨之降低，因此可以得知，增長的燕尾碳鍊能夠穩定 SmA\* 相，但抑制了 SmC\* 相的形成。

15

20

圖 3 係為化合物 III(X,Y) 以側鍊取代鹵素為變因之相變化圖。從圖中可知，在化合物 III 的核中若有側鍊鹵素取代，則抑制了 mesophase 的生成，並且降低轉變溫度以及熔點。以化合物 III(F,H) 以及化合物 III(H,F) 做比較，2-fluoro 取代的化合物具有較高的轉變溫度，證明 2-fluoro 取代之化合物具有空間上屏障效果，因此分子體積擴張度最小。而化合物 III(Cl,H) 與未取代的化合物 I(10,2,2) 相較之下，前者具有降

25

低許多的轉邊溫度，因此較大的側鍊取代基（例如氣）將會影響mesophase的生成。

各化合物的自發性極化( $P_s$ )值請見於圖4-6。圖4顯示出化合物I(m,2,2)的最大 $P_s$ 值係介於107-119 nC·cm<sup>-2</sup>之間。因此 $P_s$ 值與碳鍊長度的相關性並不高。

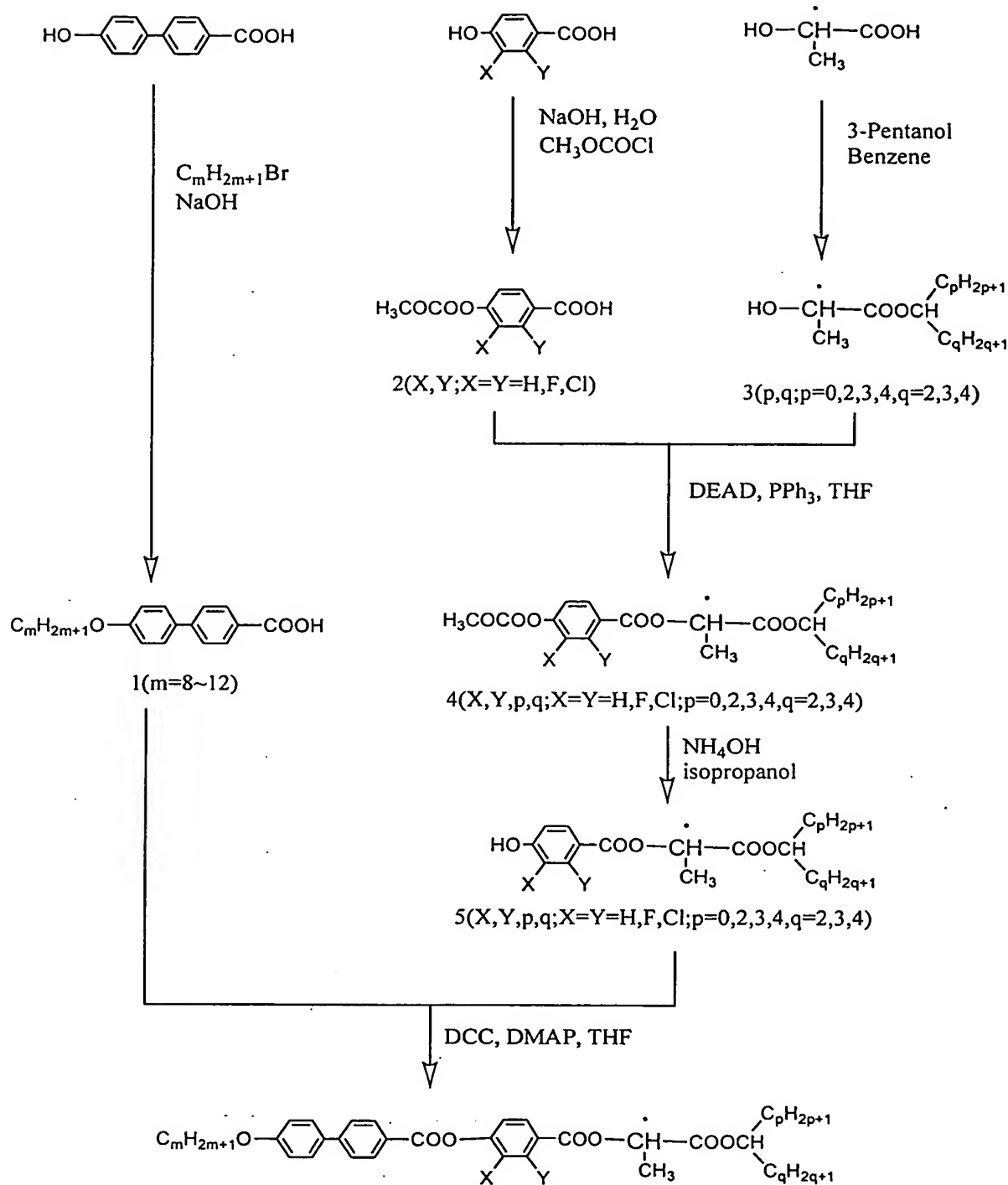
圖5顯示出化合物II(10,n,q)的最大 $P_s$ 值係介於97-119 nC·cm<sup>-2</sup>之間，與化合物II(10,0,2)及化合物I(10,2,2)相較之下，具有直鍊碳鍊的光學化合物具有較低的自發性極化值。而化合物I(10,2,2)與化合物II(10,3,3)相較之下，可發現具有較長燕尾基之碳鍊化合物會抑制其 $P_s$ 值。

圖6顯示出化合物III(X,Y)與未取代化合物I(10,2,2)的比較結果。化合物I(10,2,2)具有較高的 $P_s$ 值。

電-光學應答(electro-optical response)數據係在交叉的極化器其中極化器以及分析儀的光軸分別平行及垂直於液晶胞中的層列層的狀態下獲得。圖7顯示出化合物I(10,2,2)、化合物II(10,0,2)以及化合物III(Cl,H)在一5  $\mu$ m胞中施加一三角波之後的穿透應答對電場變化圖。應答與溫度及頻率之間有高度相關性。當溫度降低時，最大穿透值隨之增加。化合物II(10,0,2)在SmC\*相的光學切換(optical switching)在外加頻率為0.5 Hz時，顯示出典型的鐵電性正常磁滯圈(hysteresis loops)。然而，旋光性燕尾化合物（如化合物I(10,2,2)）則在SmC\*相下、施加0.5Hz電波時展現出U型switching。

為能讓 貴審查委員能更瞭解本發明之技術內容，特舉  
五製備例及二較佳具體實施例說明如下。

本發明產物之製備方法基本上係以下列之反應機構進  
行：



製備例一：4-(4-alkyloxyphenyl)benzoic acids-產物 1

將 25 mmol 的 4-(4-Hydroxyphenyl)benzoic acid 與 200ml 的乙醇混合，接著加入一溶液內含氫氧化鉀 50 mmol、碘化鉀 3.6 mmol 以及蒸餾水 50ml，反應物在逆流下進行加熱一小時。接著滴入 75 mmol 的 1-bromoalkane，並持續在逆流下進行加熱 12 小時。接著加入 100ml 的 10% 氫氧化鉀溶液，並持續逆流 2 小時。冷卻至室溫後，加入 5% HCl 並且過濾。粗產物以冷水清洗並以冰醋酸及絕對酒精再結晶後，得到產率 60~70% 之產物 1。

10

製備例二：4-Methoxycarbonyloxybenzoic acid-產物 2(H,H)

將一氫氧化鈉水溶液 (NaOH 175 mmol, H<sub>2</sub>O 200ml) 維持在 0°C，加入 65 mmol 的 4-hydroxybenzoic acid 並大力攪拌。接著緩慢加入 105 mmol 的 methyl chloroformate 上述溶液中並保持在 0-5°C。混合泥狀物繼續攪拌 4 小時，接著加入濃氯化氫：水 = 1:1 使得其 pH 值達到 5。大量沈澱藉由過濾以及乙醇再結晶之後，得到白色固體。產物 2(H,H) 之產率為 85%，<sup>1</sup>H NMR (400 MHz, CDCl<sub>3</sub>); δ (ppm) 8.15 (s, 1H, -COOH), 8.10-7.23 (d, d, 4H, -ArH), 3.92 (s, 3H, -OCH<sub>3</sub>)。

20

製備例三：1-Ethylpropyl (S)-2-hydroxypropionate, 產物 3(2,2)

130 mmol 的 (S)-2-Hydroxypropionic acid 以及 150 mmol 的 3-propanol 溶於無水苯 30ml 中，在逆流中以 Dean and Stark trap 加熱 10 小時。將苯蒸發並在真空下蒸餾殘留物。得到無

色液體 1-ethylpropyl (*S*)-hydroxypropionate 之產物 3(2,2) 之  
產率 45%。<sup>1</sup>H NMR (400 MHz, CDCl<sub>3</sub>); δ (ppm) 0.84-0.76 (m,  
6H, -(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), 1.36-1.31(d, 3H, -CHCH<sub>3</sub>), 1.55-1.38(m, 4H,  
-CH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), 3.84(s, 1H, -OH), 4.21-4.15(m, 1H,  
5 -COOCH-), 4.76-4.70(m, 1H, -COOCH(CH<sub>2</sub>-)<sub>2</sub>)。

製備例四：1-Ethylpropyl (*S*)-2-[4-(methoxycarbonyloxy)-  
phenyloxy]propionate-產物 4(H,H,2,2)

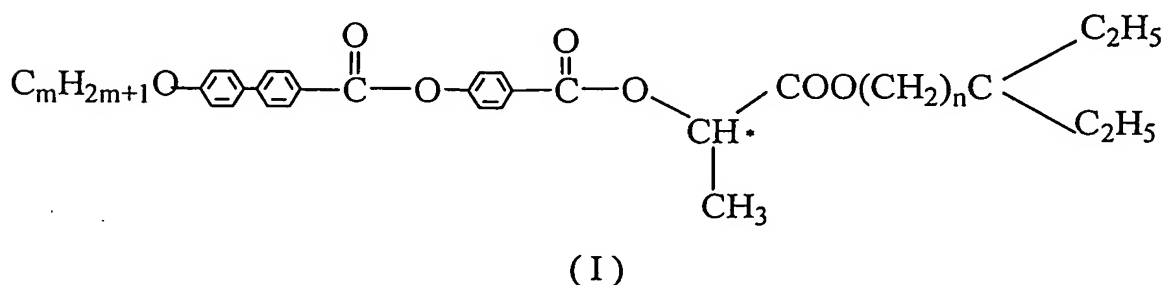
一包含有 diethyl azodicarboxylate (DEAD) 13 mmol 以  
10 及產物 2(H,H) 13 mmol 溶於無水 THF 10ml 之溶液，在室溫  
下被滴加入一包含有 triphenylphosphine (Ph<sub>3</sub>P) 13 mmol 以及  
產物 3(2,2) 10 mmol 溶於無水 THF 10 ml 之溶液，並大力攪  
拌，反應立即開始。在室溫置放隔夜後，從濾出物中移除  
triphenylphosphine oxide，且在真空中移除 THF。再檢查程  
15 序之後，產物藉由矽膠管柱層析法(70-230 mesh)，利用 ethyl  
acetate/hexane (v/v = 2/8) 作為洗提液以得到一無色液體。產物  
4(H,H,2,2) 之產率為 75%。<sup>1</sup>H NMR (400 MHz, CDCl<sub>3</sub>); δ  
(ppm) 0.91-0.82 (m, 6H, -(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), 1.56-1.49(d, 3H,  
-CHCH<sub>3</sub>), 1.62-1.58(m, 4H, -CH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), 3.90(s, 3H,  
20 -COOCH<sub>3</sub>), 4.84-4.80(q, 1H, -COOCH(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-), 5.30-5.27(m,  
1H, -COOCHCH<sub>3</sub>-,-ArH), 8.12-7.23 (d, d, 4H)。

製備例五：1-Ethylpropyl (*S*)-2-(4-hydroxyphenylcarbonyloxy)  
-propanoate-產物 5 (H,H,2,2)

3 mmol的產物4(H,H,2,2)加入一含有90 ml isopropanol  
以及30ml氨水(28%)的混合液中，在室溫下攪拌50分鐘(TLC  
分析顯示完全反應)；接著到入40ml水中，持續攪拌。產物  
以dichloromethane (3×50ml)萃取。萃取物以brine(3×50ml)清  
5 洗，以MgSO<sub>4</sub>乾燥，接著過濾並蒸餾以獲得一無色油狀液  
體。此油狀液體藉由管柱層析法以矽膠(70-230 mesh)並使  
用dichloromethane作為洗提液。分離出之產物在真空中乾燥  
後，得到產率為80%之產物5(H,H,2,2)。<sup>1</sup>H NMR (400 MHz,  
CDCl<sub>3</sub>); δ (ppm) 0.87-0.79 (m, 6H, -(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), 1.58-1.46(d,  
10 3H, -CHCH<sub>3</sub>), 1.76-1.58(m, 4H, -CH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>), 4.81-4.75 (m,  
1H, -COOCH(CH<sub>2</sub>)), 5.23-5.18 (q, 1H, -COOCHCH<sub>3</sub>-), 6.27(s,  
1H, -OH-), 7.85-6.73 (d, d, 4H, -ArH)。

實施例一：1-Ethylpropyl (S)-2-[4-(4'-alkyloxy-  
15 biphenylcarbonyloxy)phenylcarbonyloxy]propanoates：化合  
物I系列(m,2,2; m=8-12)

化合物(I)系列一般具有如下式(I)之結構式：



20

28.8 mmol的4-(4'-alkyloxyphenyl)benzoic acid，0.8g  
(3.1mmol)的產物5，2.8 mmol的N,N'-dicyclohexyl-

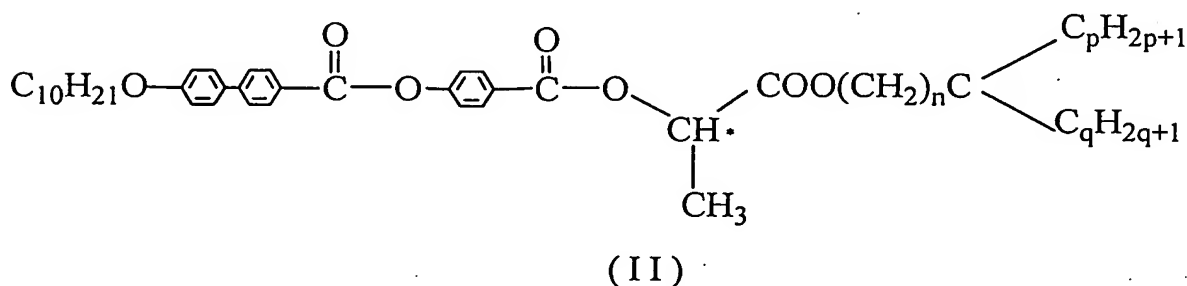


carbodiimide, 0.28 mmol的 4-dimethylaminopyridine, 以及 15ml無水THF的混合物, 在室溫下攪拌三天。沈澱物被濾出並分別以5%醋酸水溶液(3×50 ml), 5%飽和碳酸氫鈉水溶液(3×50 ml)以及清水(3×50ml)清洗; 過濾物接著以無水硫酸鎂乾燥並在真空中濃縮。殘餘物以管柱層析法以矽膠(70-230 mesh)並以dichloromethane為洗提液而純化。以絕對酒精再結晶並得到40%產率之最終產物。以化合物I(10,2,2)為例, 其化學位移在  $^1\text{H}$  NMR (400 MHz,  $\text{CDCl}_3$ ) 為:  $\delta$  (ppm) 1.81-0.84 (m, 32H,  $\text{RCH}_2\text{CH}_3$ ), 4.01-3.98 (t, 2H,  $\text{ArOCH}_2$ ), 4.86-4.80(m, 1H,  $-\text{COOCH}$ ), 5.33-5.27 (q, 1H,  $-\text{COOCHCH}_3\text{COO}$ ), 8.22-6.98 (d, d, 12H,  $-\text{ArH}$ )。

實施例二：化合物II系列(10,p,q)以及化合物III系列(X,Y)之合成

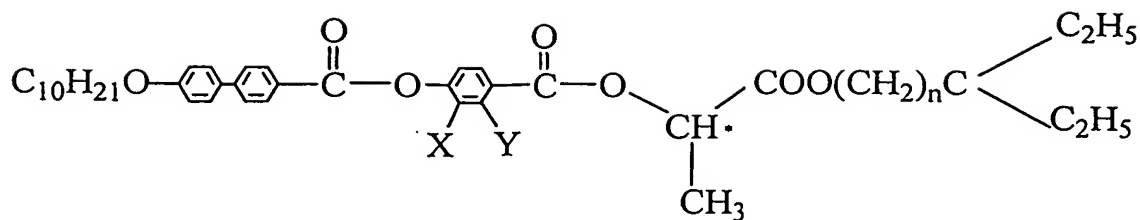
此二化合物系列之合成係依照以上所述之方式實施。

化合物II系列一般具有如下式(II)之結構式：



其中n為0或1; p及q分別獨立地為0~4之整數。

化合物(III)一般具有如下式(III)之結構式：



(III)

其中n為0或1；X及Y分別獨立地，為氟原子或氯原子。

- 5 綜上所述，本發明所提出之旋光性液晶材料，其具有寬廣的操作溫度範圍，並具有強鐵電性性質，可以進一步作為液晶顯示器所充填之液晶材料的前驅物質。

10 上述實施例僅係為了方便說明而舉例而已，本發明所主張之權利範圍自應以申請專利範圍所述為準，而非僅限於上述實施例。

### 【圖式簡單說明】

15 圖1係本發明化合物I(m,2,2)之相轉變溫度對末端碳鍊長度m之變化圖。

圖2係本發明II(10, n, q; n=0,2~4, q=2~4)直鍊碳鍊或燕尾碳鍊作為變因連接到旋光尾端在冷卻時的相變化圖。

圖3係本發明化合物III(X,Y)以側鍊取代鹵素為變因之相變化圖。

20 圖4係本發明化合物I(m,2,2)之自發性極化(P<sub>s</sub>)值。

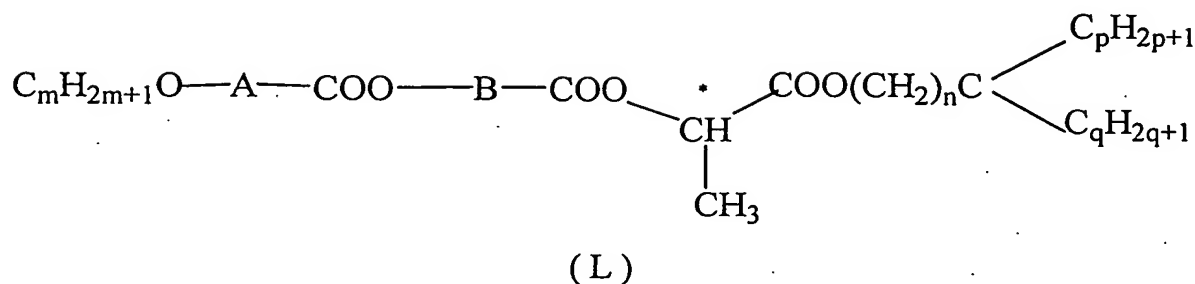
圖5係本發明化合物II(10,n,q)之自發性極化(P<sub>s</sub>)值。

圖 6 係本發明化合物 III(X,Y) 未取代化合物 I(10,2,2) 之自發性極化 ( $P_s$ ) 值。

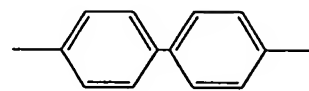
圖 7 係本發明化合物 I(10,2,2)、化合物 II(10,0,2) 以及化合物 III(Cl,H) 在一  $5 \mu m$  胞中施加一三角波之後的穿透應答對電場變化圖。

## 拾、申請專利範圍：

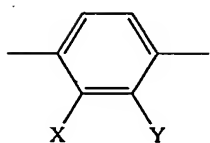
1. 一種具有旋光性之化合物，其係具有如下式(L)之通式：



其中，A,B分別獨立地為，

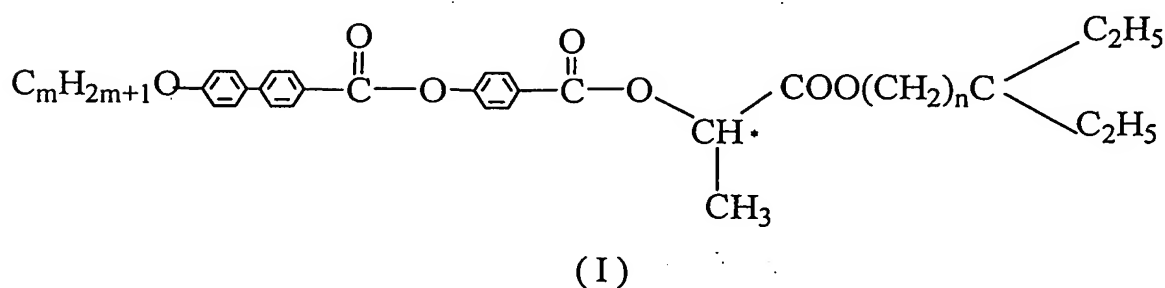


，或



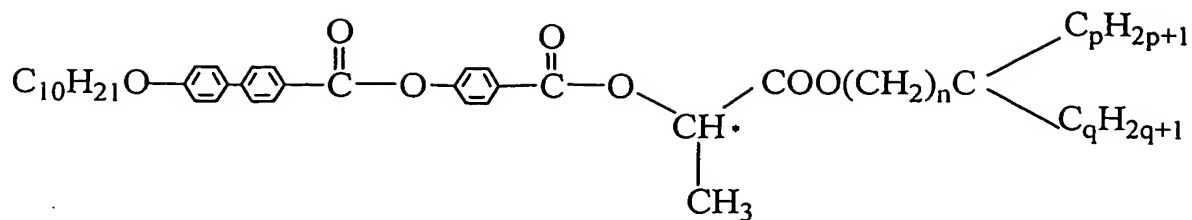
；X,Y分別獨立地為氟原子(F)，氫原子(H)，或氯原子(Cl)；m為8~12之整數；n為0或1；p為2或3；以及q為2或3。

10 2. 如申請專利範圍第1項所述之具有旋光性之化合物，其中該化合物係具有如下式(I)之結構式：



；其中m為8~12之整數；及n為0或1。

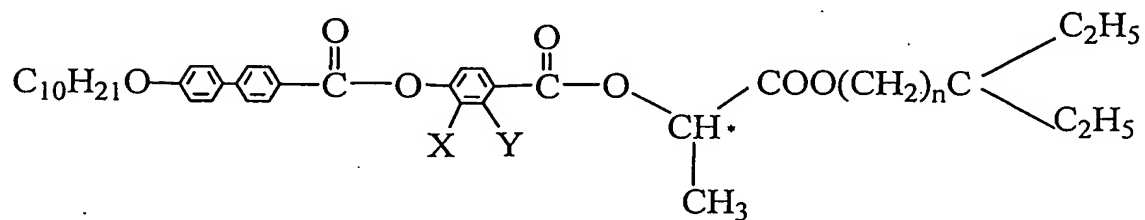
15 3. 如申請專利範圍第1項所述之具有旋光性之化合物，其中該化合物係具有如下式(II)之結構式：



(II)

；其中  $n$  為 0 或 1； $p$  為 0, 2, 3, 或 4；及  $q$  為 2~4 之整數。

4. 如申請專利範圍第 1 項所述之具有旋光性之  
5 化合物，其中該化合物係具有如下式 (I-3) 之結構式：



(III)

其中  $n$  為 0 或 1； $X$  為 氟 原 子 或 氯 原 子；以及  $Y$  為 氟 原  
子 或 氯 原 子。

10

15

20

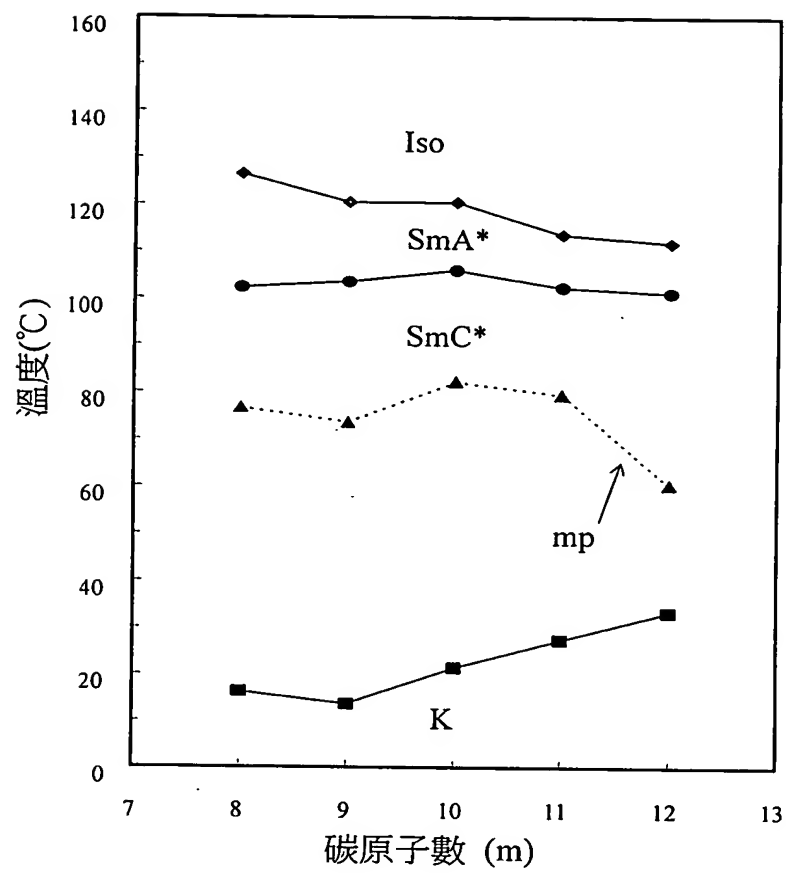


圖 1

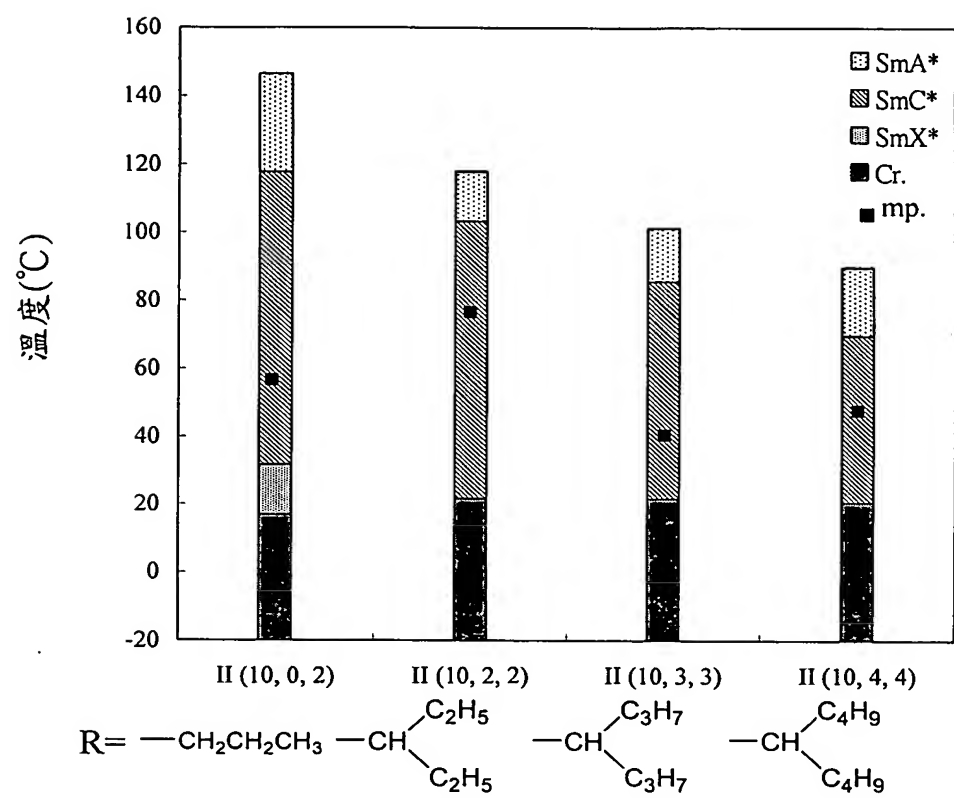


圖 2

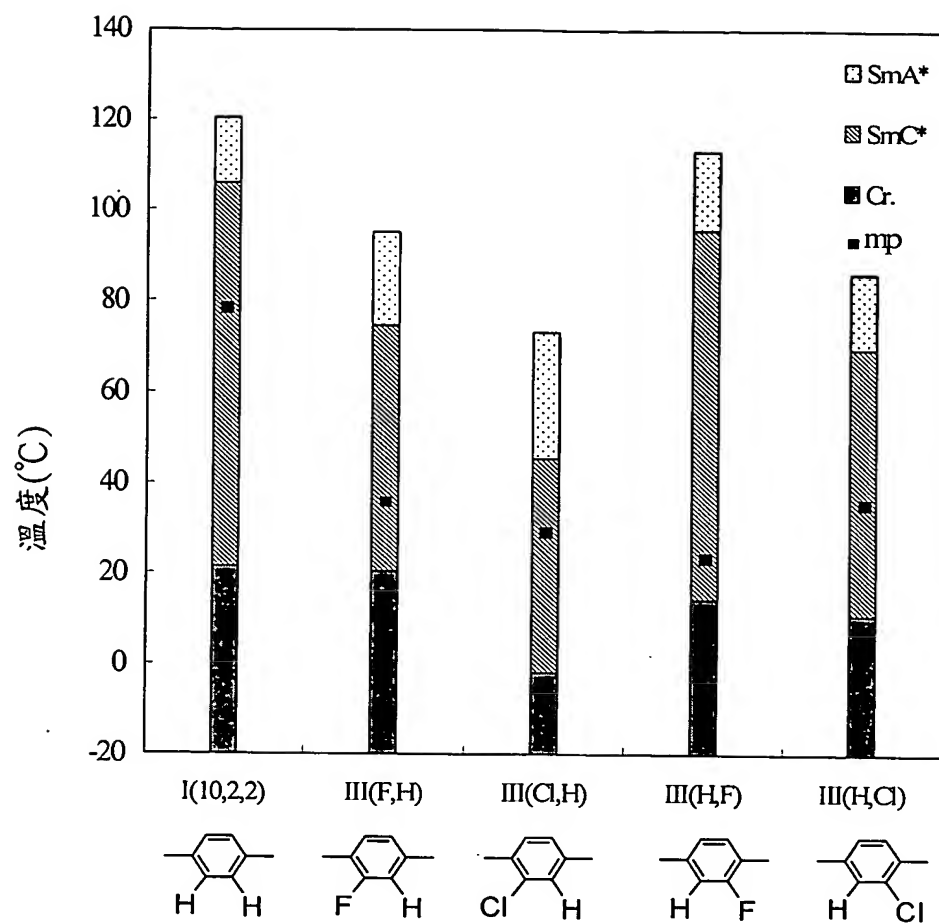


圖 3



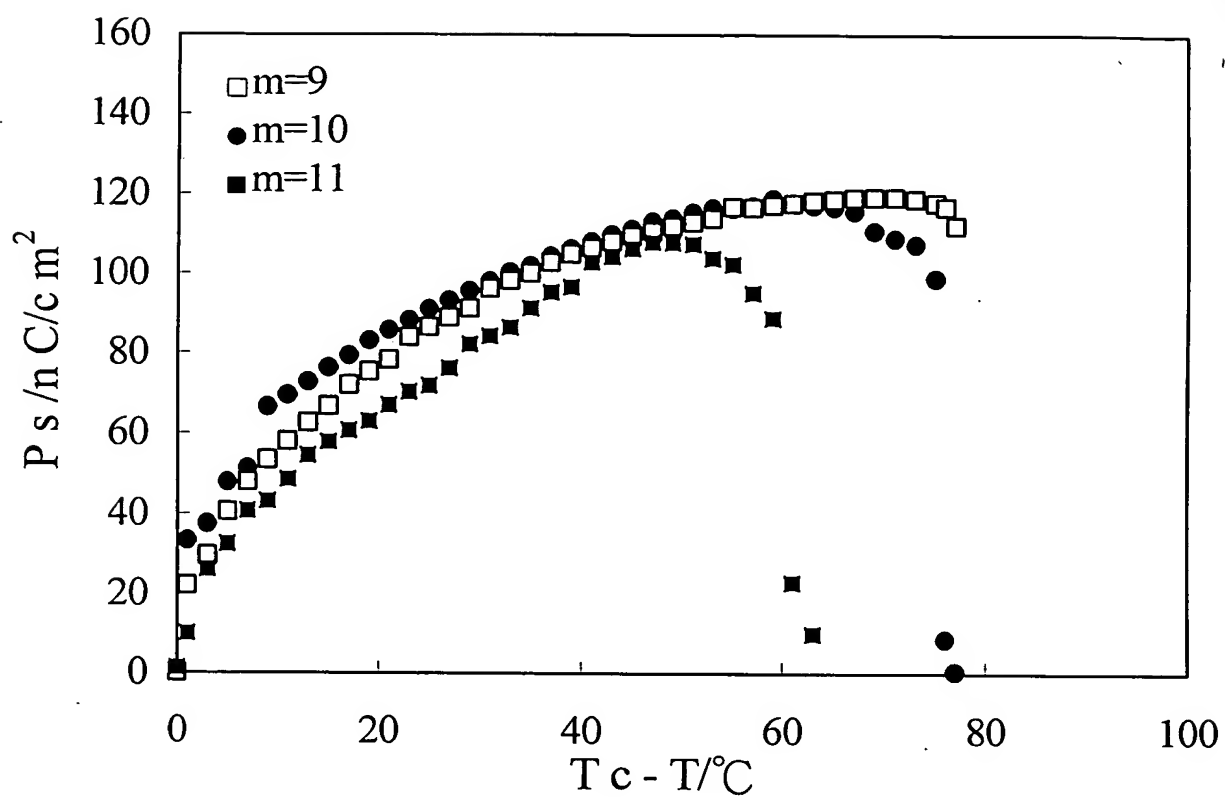


圖 4

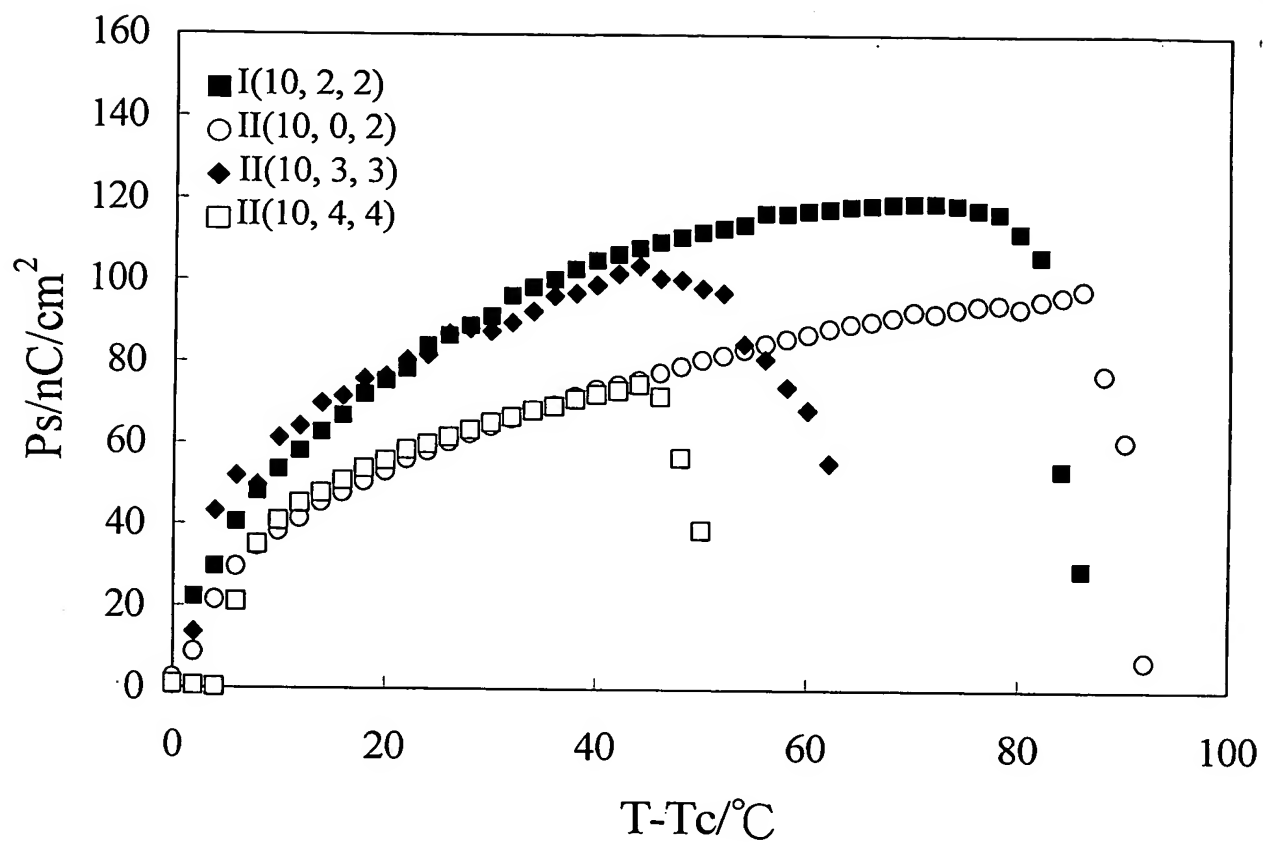


圖 5

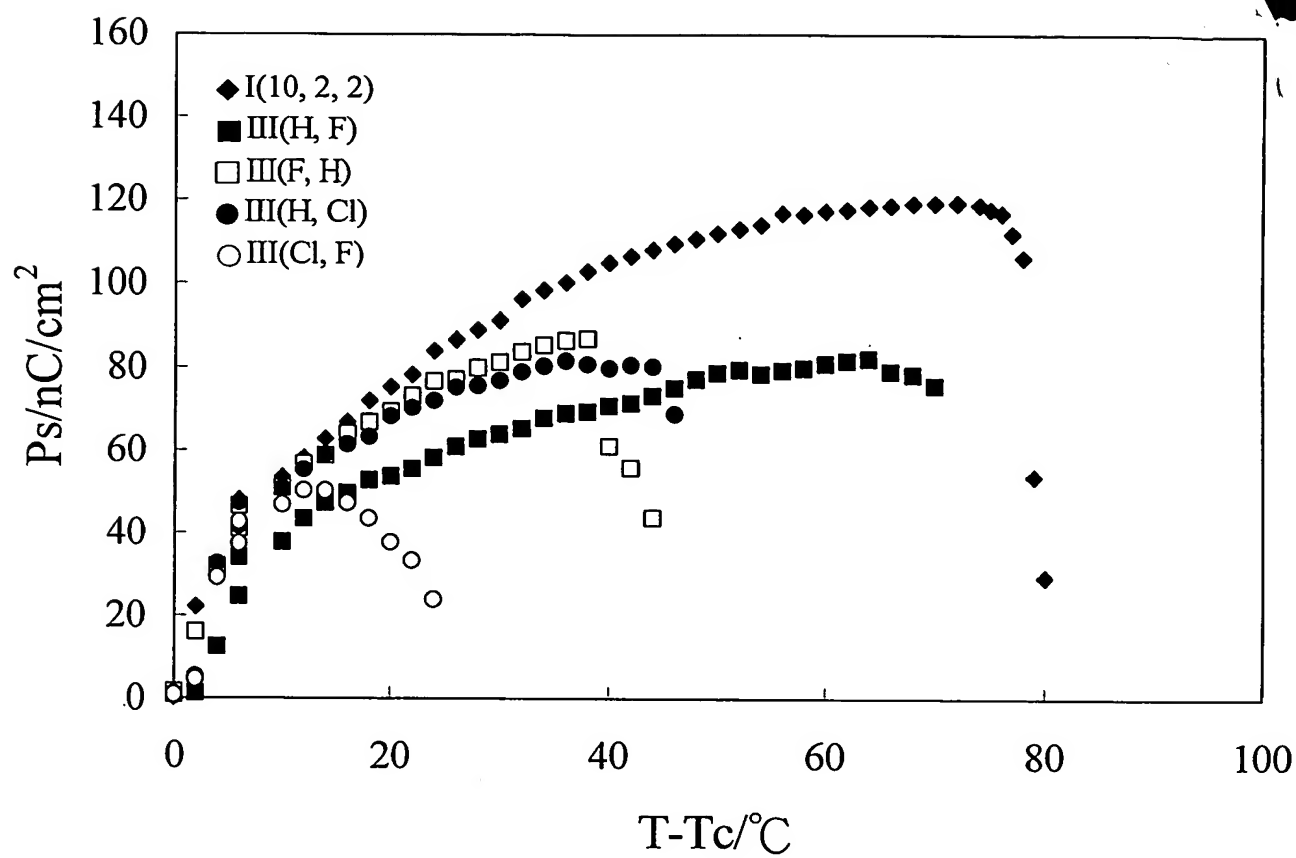


圖 6

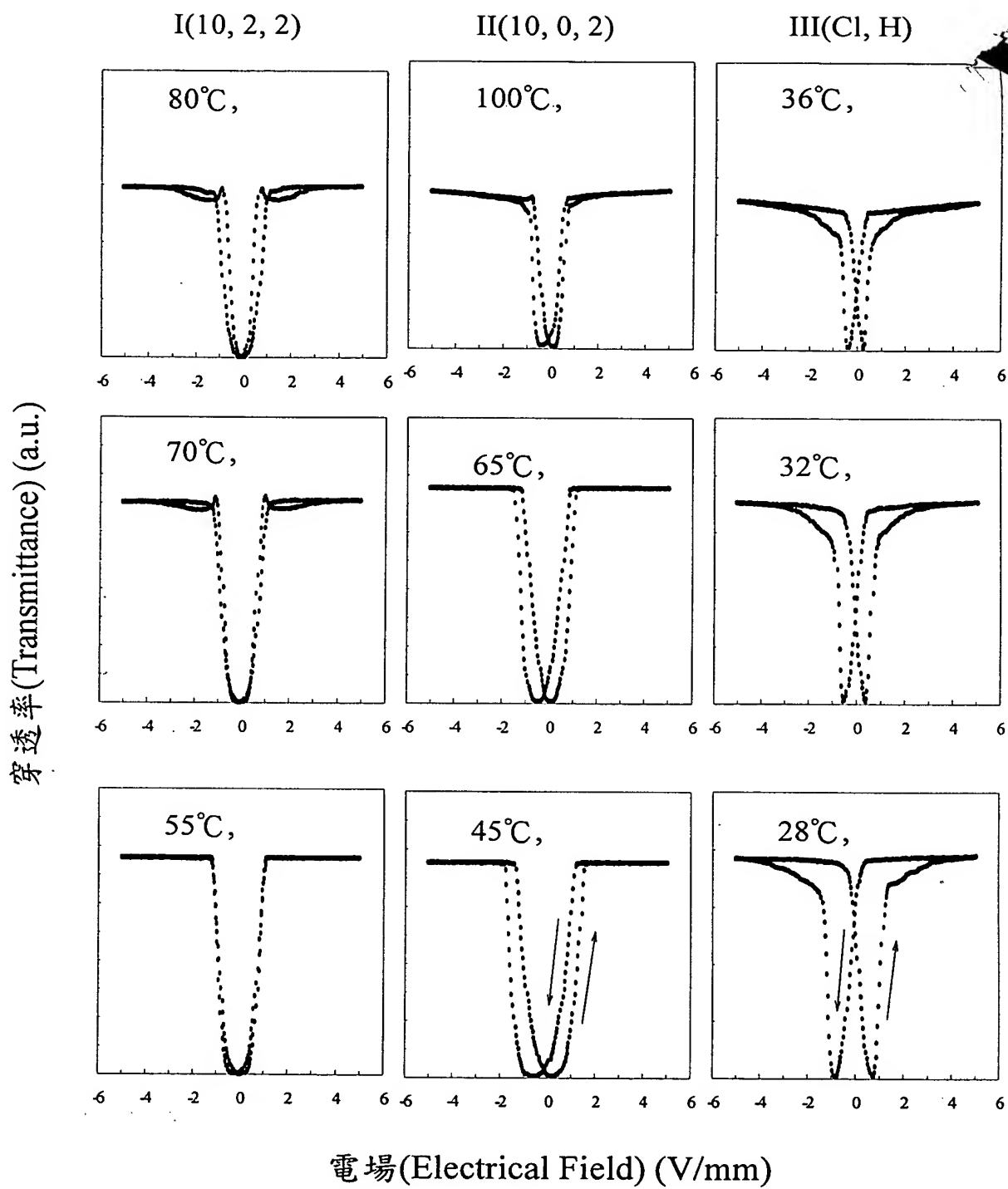


圖 7